

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**(11)Publication number : 2000-234055****(43)Date of publication of application : 29.08.2000****(51)Int.Cl.****C08L 79/08
C08K 3/04
C08K 5/42
C08K 7/02
C09K 3/10
H01M 8/02****(21)Application number : 11-037431****(71)Applicant : NICHIAS CORP****(22)Date of filing : 16.02.1999****(72)Inventor : YAMADA HITOSHI
MORIMOTO KAZUKI
KUSUNO KATSUYA
WADA SHUICHIRO
NISHIMOTO KAZUO****(54) RESIN COMPOSITION****(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a resin composition which may contain a large amount of electrically conducting fillers, exerts a high productivity and yields a molded product having a high conductivity and mechanical strength, and also provide a fuel battery separator or sealing material prepared by molding the composition.

SOLUTION: This resin composition comprises, based on 100 pts.wt. polyimide resin, from 40 to 900 pts.wt. one or more electrically conducting fillers chosen from the group consisting of graphite, ketchen black, acetylene black, furnace carbon black and thermal carbon black. A fuel battery separator and a sealing material are prepared from the resin composition.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2000-234055
(P2000-234055A)

(43)公開日 平成12年8月29日(2000.8.29)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
C 0 8 L 79/08		C 0 8 L 79/08	B 4 H 0 1 7
C 0 8 K 3/04		C 0 8 K 3/04	4 J 0 0 2
	5/42	5/42	5 H 0 2 6
	7/02	7/02	
C 0 9 K 3/10		C 0 9 K 3/10	Z
審査請求 未請求 請求項の数9 O L (全 7 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願平11-37431

(22)出願日 平成11年2月16日(1999.2.16)

(71)出願人 000110804

ニチアス株式会社

東京都港区芝大門1丁目1番26号

(72)発明者 山田 均

静岡県浜松市新都1丁目8番1号

(72)発明者 森本 和樹

静岡県浜松市新都1丁目8番1号

(72)発明者 楠野 勝也

静岡県浜松市新都1丁目8番1号

(72)発明者 和田 周一郎

静岡県浜松市新都1丁目8番1号

(74)代理人 100073874

弁理士 萩野 平 (外3名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 樹脂組成物

(57)【要約】

【課題】 導電性フィラーを多量に含有でき、かつ生成性にも優れ、高い導電性と機械的強度とを兼備した成形品が得られる樹脂組成物、並びにそれを成形して得られる燃料電池用セパレータやシール材料を提供する。

【解決手段】 ポリイミド樹脂100重量部に対して、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、フェーネスカーボンブラック、サーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上の導電性フィラーを40～900重量部含有して成る樹脂組成物、並びに前記樹脂組成物からなる燃料電池用セパレータ及びシール材料。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリイミド樹脂100重量部に対して、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、フェーネスカーボンブラック、サーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上の導電性フィラーを40～900重量部含有して成ることを特徴とする樹脂組成物。

【請求項2】 ポリイミド樹脂が付加型の熱硬化性ポリイミドであることを特徴とする請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項3】 ポリイミド樹脂がビスマレイミド型ポリイミドであることを特徴とする請求項2に記載の樹脂組成物。

【請求項4】 導電性フィラーが膨張黒鉛または粒状黒鉛であることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

【請求項5】 導電性フィラーの配合量が100～600重量部であることを特徴とする請求項1～4のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

【請求項6】 p-トルエンスルホン酸、p-キシレンスルホン酸、トルエンスルホン酸メチル、ビリジニウム・p-トルエンスルホネート、ビリジニウム m-ニトロベンゼンスルホネート、硫酸メチルヒドラジンから成る群より選択される一以上の化合物を、ポリイミド樹脂100重量部に対して0.1～5重量部含有することを特徴とする請求項2～5のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

【請求項7】 炭素繊維及び／またはガラス繊維1～100重量部をさらに含有することを特徴とする請求項1～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物。

【請求項8】 請求項1～7のいずれか一項に記載の樹脂組成物から成ることを特徴とする燃料電池用セパレーター。

【請求項9】 請求項1～7のいずれか一項に記載の樹脂組成物から成ることを特徴とするシール材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、樹脂組成物、並びにそれに基づく燃料電池用セパレーター及びシール材料に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、燃料の有する化学エネルギーを電気的エネルギーに直接変換する燃料電池に関する需要が高まっている。一般に燃料電池は、電解質を含有するマトリックスを挟んで電極板が配置され、さらにその外側にセパレーターが配置された単位セルを、多数積層した構成となっている。通常、セパレーターの片面には燃料が、もう一方の面には気体酸化剤等が供給されるので、セパレーターは両者が混合しないよう、気体不透過性に優れることが必要である。また、単位セルを積層して用いるので、セパレーターは高い導電性を有し、かつ強度

にも優れることが要求される。

【0003】従来より、燃料電池用セパレーターとしては、黒鉛シートをプレス成形して得られた成形品、炭素焼結体に樹脂を含浸させた樹脂含浸材、熱硬化性樹脂を不活性雰囲気中で焼成して得られるガラス状カーボン、炭素粉末と樹脂を混合後成形した樹脂成形品等が用いられている。例えば特開昭58-53167号公報、特開昭60-37670号公報、特開昭60-246568号公報、特公昭64-340号公報、特公平6-22136号公報、W097/02612号公報には、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂と黒鉛、カーボンから成るセパレーターが；特公昭57-42157号公報には、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂とグラファイト等の導電性物質とから成る双極隔離板が；特開平1-311570号公報には、フェノール樹脂、フラン樹脂等の熱硬化性樹脂に膨張黒鉛及びカーボンブラックを配合して成るセパレーターが；特開平8-259767号公報にはエチレン-酢酸エチル共重合体等にカーボンブラックを含有させた導電性プラスチック板が、それぞれ開示されている。また、特開平8-31231号公報には、熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂にケッチェンブラック及び真球状黒鉛を配合して得られる成形品が開示され、樹脂として芳香族ポリイミド等が記載されている。

【0004】また、黒鉛やカーボンブラック等のフィラーはシール材料用の原料としても用いられる。例えばカーボンブラックをゴム等のポリマーに充填すると、ポリマーの溶剤膨潤度を改善し、また、強度、耐摩耗性等の特性を付すことができる。黒鉛は、その優れた摺動性とフランジ表面へのなじみ性故、単体でまたはポリマーとの複合材の形で、パッキンやガスケット等のシール材料として用いられる。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、燃料電池用セパレーターとして樹脂含浸材を使用する場合、燃料ガスを流通させるためのチャンネル（溝）形成のための切削加工が必要となり、製造に手間とコストがかかる。また、ガラス状カーボンを用いると焼成前に製品形状への成形加工が可能となるが、焼成時の寸法収縮等、寸法安定性の点で問題が生じる。また、樹脂成形品は、成形が容易であるが、樹脂の電気絶縁性の故に導電性に劣る欠点があり、これを改善すべく導電性フィラーを多量充填すると、成形が困難または不可能となる。

【0006】一方、シール材料においても、導電性フィラーの多量充填は様々な利点をもたらす。例えばカーボンブラックをゴム中に多量充填し、耐ガス透過性を改善することができる。特に黒鉛系シール材料においては、高い摺動性や表面なじみ性を得る上で、黒鉛配合率をできるだけ高めることが望ましい。しかし、導電性フィラーの多量充填を行うと、同様に成形性の悪化等の問題が生じる。

【0007】本発明は上記の状況に鑑みてなされたもの

であり、導電性フィラーを多量に含有でき、かつ成形性にも優れ、高い導電性と機械的強度とを兼備した成形品が得られる樹脂組成物を提供すること、並びに前記樹脂組成物を成形して得られる燃料電池用セパレータやシール材料を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、導電性フィラーとの複合化に使用する樹脂について検討した結果、ポリイミド樹脂を使用することによって、導電性フィラーの含有量を高めても成形が容易で、燃料電池用セパレーターとして十分に高い導電性と機械的強度とが得られ、またシール材料として十分に高い摺動性や表面なじみ性が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。すなわち本発明は、上記の目的を達成するために、ポリイミド樹脂100重量部に対して、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ファーネスカーボンブラック、サーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上の導電性フィラーを40～900重量部含有して成ることを特徴とする樹脂組成物を提供する。また、上記樹脂組成物を成形して得られる燃料電池用セパレータ及びシール材料を提供する。

【0009】ここで、樹脂成分としてポリイミドを使用することが、本発明の重要な要件である。後記する実施例でも示すように、他のポリマーを用いても、本発明が目的とする高導電性、高強度、成形容易性等の物性を兼備する複合材を得ることはできない。例えば樹脂自体の電気抵抗がポリイミドよりも小さいポリマーを用いても、複合材の導電性は必ずしも良好にならない。これに対してポリイミド樹脂は通常、絶縁体として用いられるようなポリマーであるにも拘わらず、これを成分とする本発明の樹脂組成物は導電性が良好で、強度等の物性も優れている。特に高温でも高強度を発現する利点がある。これらは全く予期されなかったことである。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明する。本発明の樹脂組成物に使用されるポリイミド樹脂は、公知のもので構わない。本発明においてポリイミド樹脂とは、分子内にイミド基 $[-CO-]_2N-$ を有するポリマーの総てを包含する。例としてポリアミドイミド、ポリエーテルイミド等の熱可塑性ポリイミド；（全）芳香族ポリイミド等の非熱可塑性ポリイミド；熱硬化性ポリイミド、例えばビスマレイミド型ポリイミド、アリルナジイミド等のナジック酸型ポリイミド、アセチレン型ポリイミド等が挙げられるが、これらに限定されない。複数のポリイミドを併用することもできる。例えば、特開平4-282565号公報、特開平8-31231号公報に記載されているような芳香族ポリイミド、特に特開平6-145639号及び特開平8-73832号公報に記載されている α 、 ω -アルギレンビス（トリメリート二無水物）とジアミンとの重縮合により得られるポリイミドを用いて

もよく；また、特開平4-145197号公報に記載されているポリアミドイミド（熱可塑性ポリイミド）を使用することができる。

【0011】しかしながら本発明においては、熱硬化性ポリイミドの使用が好ましい。熱硬化性ポリイミドは、熱可塑性ポリイミドや非熱可塑性（芳香族）ポリイミドに比べて加工が容易であるという利点を有する。高温特性は非熱可塑性ポリイミドと比べれば劣るものの、各種有機ポリマーの内では極めて良好な部類である。しかも、硬化の際にボイドやクラックを殆ど発生しないので、本発明の樹脂組成物の成分として好適である。熱硬化性ポリイミドは例えば、末端に不飽和基を有する低分子量のモノマーまたはオリゴマーをプレポリマーとし、これを付加反応、縮合反応、ラジカル反応を介して三次元架橋することによって得ることができる。また、特公平2-213052号公報に記載されているような縮合型のポリイミド（水を放出）も使用できる。本発明はまた、ポリイミド樹脂が上記プレポリマーの形態にあるものをも包含する。

【0012】本発明のより好ましい態様においては、付加型の熱硬化性ポリイミド、例えばアリルナジイミド型、マレイミド型、トリアジン型、またはマイケル付加型等のポリイミドを使用する。付加型のポリイミドは、プレポリマー（低分子量モノマーまたはオリゴマー）中の不飽和基の付加反応によって硬化が進行する。それ故、硬化時に縮合水その他の揮発性物質が生じず、気泡やクラックのない組成物を与える。付加型ポリイミドのプレポリマーは、例えばアリルナジック酸無水物とジアミン（ヘキサメチレンジアミン、ビス（4-アミノフェニル）メタン、 m -キシリレンジアミン等）との反応、アリルナジック酸無水物とヒドロキシフェニルアミンやアリルアミンとの反応、無水マレイン酸等とジアミン（例えばジアミノジフェニルメタン等）との反応、ビニルベンジル化合物等とマレイミド等との反応によって得ることができる。また、丸善石油化学（株）より「BANI」の商標で、東芝ケミカル（株）より「イミダロイ（KIR）」の商標で、それぞれ市販もされている。これらの内でも特に、ビスマレイミド系のポリイミドが好ましい。一般にビスマレイミド型ポリイミドは硬化が迅速であり、それ故成形に際して過酷な条件を選定する必要がない。

【0013】本発明の樹脂組成物において、導電性フィラーとしては、黒鉛、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ファーネスカーボンブラック、サーマルカーボンブラックから成る群より選択される1以上を使用する。導電性フィラーとしてこれらカーボン系のものを用いることにより、組成物の耐腐食性を高め、また、燃料電池等として用いられる際にも副反応を防止することができる。これらの内、ケッチェンブラック、アセチレンブラックは導電性フィラーとして開発されたものであ

り、それぞれ天然ガス等の不完全燃焼、アセチレンの熱分解により得られる。また、ファーネスカーボンブラックは炭化水素油や天然ガスの不完全燃焼により得られるカーボンであり、粒径に応じてSAF, ISAF, IISAF, HAF, FF, FEF, MAF, GPF, SRF, CF等に分類される。また、サーマルカーボンブラックは天然ガスの熱分解により得られる大粒子径のカーボンであり、例としてFTカーボン、MTカーボン等が挙げられる。

【0014】本発明においてはこれら導電性フィラーのいずれを用いても良く、また、複数の導電性フィラーを併用することも可能であるが、より好ましくは黒鉛またはケッチェンブラックを、特に好ましくは黒鉛を使用する。黒鉛の種類に特に制限はなく、粒状黒鉛、鱗片状黒鉛、膨張黒鉛、コロイド黒鉛等、どのような形態の黒鉛をも使用することができる。フッ化グラファイト、または各種金属原子、ハロゲン原子、ハロゲン化合物等をインターカレートしたグラファイト層間化合物の使用も可能である。ここで、膨張黒鉛とは黒鉛結晶構造の層間を拡張処理したもので、極めて高いものとなっている。膨張黒鉛としては、好ましくは嵩比重が0.3程度以下、より好ましくは0.1程度以下、特に好ましくは0.05程度以下のものを使用する。これら膨張黒鉛を用いると、導電性、潤滑性が特に良好となる。上記した黒鉛の中でも膨張黒鉛が、次いで粒状黒鉛が、特に好ましい。

【0015】導電性フィラーの配合量は、ポリイミド樹脂100重量部に対し、40～900重量部とする。導電性フィラーの配合量が40重量部を下回ると十分な導電性が得られず、900重量部を越えると強度あるいは成形上の点で問題を生じる。これらの点を考慮すると、導電性フィラーの配合量はより好ましくは60～800重量部、さらに好ましくは100～600重量部、特に好ましくは150～400重量部程度である。

【0016】本発明の樹脂組成物は、繊維を添加することにより、得られる成形品を強化することも可能である。例えば、炭素繊維やガラス繊維を、ポリイミド樹脂100重量部に対して1～100重量部、特に10～50重量部程度配合すると、得られる成形品の強度、特に耐衝撃性を改善することができる。炭素繊維、ガラス繊維の種類に特に制限はなく、種々の公知の繊維を使用することができる。他にも綿、羊毛、絹、麻、ナイロン繊維、アラミド繊維、ビニロン(ポリビニルアルコール)繊維、ポリエステル繊維、レーヨン繊維、アセテート繊維、フェノールホルムアルデヒド繊維、ポリフェニレンサルファイド繊維、アクリル繊維、ポリ塩化ビニル繊維、ポリ塩化ビニリデン繊維、ポリウレタン繊維、テトラフロロエチレン繊維等の繊維を使用することも可能である。しかしながら本発明においては、炭素繊維、特にPAN系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維を使用するのが好

ましい。このことによって、導電性組成物の導電性を殆ど損なわずに、成形品の強度を改善することができる。また、繊維の形状にも特に制限はないが、好ましくは長さが約0.01～100mm、特に約0.1～20mmの範囲内の繊維を使用する。繊維長さが100mmを越えると成形が難しく、また表面を平滑にし難くなり、0.01mmを下回ると補強効果が期待できなくなる。

【0017】本発明の樹脂組成物は、種々の慣用の方法によって製造することができる。例えば、ポリイミド樹脂またはそのプレポリマーを加熱熔融または溶剤に溶解させて、導電性フィラー等を添加する。あるいは、ポリイミド(プレポリマー)粉末と導電性フィラーとをそのまま混練しても良い。上記のようにして得られた本発明の樹脂組成物は、種々の慣用の手段により、各種形状へと成形することが可能である。例えばポリイミド樹脂が熱可塑性のものである場合には射出成形、押出成形、トランスファー成形、ブロー成形、プレス成形、射出プレス成形、押出射出成形等の熱可塑性樹脂の分野で汎用の種々の成形法により成形することができる。一方、ポリイミド樹脂が熱硬化性のものである場合には、原料の種類に応じて種々の温度で種々の時間加熱プレスすることによって、それぞれ成形することができる。放射線、電子線、紫外線による硬化法を採ることもできる。また、熱硬化性ポリイミドベースの組成物に特定の化合物を添加し、硬化条件を変化させることも可能である。例えばp-トルエンスルホン酸、p-キシレンスルホン酸、トルエンスルホン酸メチル、ビリジニウム p-トルエンスルホネート、ビリジニウム m-ニトロベンゼンスルホネート、硫酸メチルヒドラジン等の化合物を、ポリイミド樹脂100重量部に対して0.1～5重量部程度加えることにより、硬化温度、硬化時間を低減させることができる。

【0018】また、これらの成形法を複数組み合わせても良い。例えば、射出成形や押出成形により得られた熱可塑性ポリイミドベースの成形品を熱硬化性ポリイミドベースの成型品と溶融接着させることもでき、押出成形等により得られたシート状物をプレス成形等によって複雑な凹凸形状の物品へと本成形することもできる。更に、成形品を加熱オーブン、電子線照射等によって二次架橋させることも可能である。当業者であれば、用途及び形状に応じ、好ましい成形法及び成形条件を選定することは容易であろう。

【0019】本発明の樹脂組成物には、他に、任意的成分として他のポリマー、例えばPET、PBT、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、低分子量ポリエステル、ポリアミド、ニトリルゴム、アクリルゴム等；他の充填材、例えばシリカ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、粘度鉱物等のフィラー、顔料等；さらには分散剤、例えばジエチレングリコールモノステアレート、モノエタノールアミン、ジエチレングリコール、パイインター

ル、老化防止剤例えば各種フェノール系、アミン系老化防止剤、カップリング剤、例えばアミノプロピトリエトキシシラン、フェニルアミノプロピトリメトキシシラン、ウレイドプロピトリエトキシシラン、グリシドキシプロピトリメトキシシラン、イソシアネートプロピトリエトキシシラン、イソプロピトリイソステアロイルチタネート、イソプロピトリデシルベンゼンスルホニルチタネート、アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート、相容化剤、難燃剤、表面平滑剤、脂肪酸、例えばステアリン酸やそのエステル、フタル酸エステル等の可塑剤、プラスチック粉末、加工助剤等を配合することもできる。

【0020】本発明の樹脂組成物は、導電性及び強度、特に高温での強度が高い成形品が得られるという利点を有する。また、耐熱性、耐溶剤性等の点でも優れている。特に、付加型の熱硬化性ポリイミドを用いた場合には、成形加工が容易であり、溶剤を用いる必要もない（但し、所望によって使用しても良い）。また、本発明の樹脂組成物は、上記の理由故、燃料電池用セパレーターの材料として最適である。さらに、導電性フィラーの種類、配合量を調整し、有機PTC材料として使用することも可能である。本発明の樹脂組成物の内、導電性フィラーとして黒鉛、特に膨張黒鉛を用いたものは、気体不透過性等に優れる上、良好な撓動性、表面なじみ性を有する。それ故、シール材料、特にパッキンとして有用である。従って、本発明は、上記樹脂組成物から成る燃料電池用セパレーター、及び好ましくは黒鉛系導電性フィラーを用いた樹脂組成物から成るシール材料をも包含する。

【0021】

【実施例】以下、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【実施例1～7、比較例1～4】

・サンプルの調製

下記に示す樹脂及び表1に示す導電性フィラーを用いて、表1に示す配合割合にて各種の樹脂組成物を作成した。

IMI-1：丸善石油化学（株）の付加型熱硬化性ポリイミド「BANI-X」（アリルノルボルネン骨格を有するナジック酸型イミドモノマー；融点40℃、体積固有抵抗

抗 $9.41 \times 10^{16} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.21）

IMI-2：丸善石油化学（株）の付加型熱硬化性ポリイミド「BANI-M」（アリルノルボルネン骨格を有するナジック酸型イミドモノマー；融点75℃、体積固有抵抗 $1.74 \times 10^{17} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.13）

IMI-3：東芝ケミカル（株）の付加型熱硬化性ポリイミド「KIR-30」（ビスマレイミド型ポリイミドプレポリマー；軟化温度約120℃、体積固有抵抗 $\geq 10^{16} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.3）

PA-1：三菱エンジニアリングプラスチックス（株）のポリアミド6「ノバミッド1012C2」（体積固有抵抗 $1 \times 10^{15} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.14）

PA-2：三菱エンジニアリングプラスチックス（株）のポリアミド66「ノバミッド3010N」（体積固有抵抗 $1 \times 10^{14} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.15）

PA-3：三菱エンジニアリングプラスチックス（株）のポリアミド12「グリルアミドTR-55」（体積固有抵抗 $1 \times 10^{16} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.06）

PBT：三菱エンジニアリングプラスチックス（株）のポリブチレンテレフタレート「ノバドゥール5010」（体積固有抵抗 $1 \times 10^{16} \Omega \text{ cm}$ 、熱変形温度60℃、比重1.31）

TPEE：東レ デュポン（株）のポリエステル系熱可塑性エラストマー「ハイトレル4047P」（体積固有抵抗 $1.8 \times 10^{12} \Omega \text{ cm}$ 、比重1.15）

【0022】樹脂組成物の作成は、上記の樹脂を、加熱装置を備えたミル中、熔融温度以上の温度にて30rpmで混練しながら、膨張黒鉛等の導電性フィラーを添加して行った。そして、15分間混練後、混練物を取り出して型内に所定量充填し、熱プレスにて100×100×2mmのシートに成形した。尚、熱プレスの条件は、実施例1、2、4～7では200℃×30分間、実施例3では200℃×5分間、比較例では130～150℃×2分間である。次いで、成形品から試験片を打ち抜き、その曲げ強さ及び体積固有抵抗率を、それぞれASTM D790、JIS K7194に従い測定した。測定結果を表1に示す。尚、実施例番号において「比」が付されているものは、比較例である。

【0023】

【表1】

表 1 各サンプルの配合と物性

実施例	1	2	3	比1	比2	比3	比4	4	5	6	7
配 合	IMI-1	25.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	IMI-2	-	30.0	-	-	-	-	40.0	40.0	50.0	66.7
	IMI-3	-	-	30.0	-	-	-	-	-	-	-
	PA-1	-	-	-	25.0	-	-	-	-	-	-
	PA-2	-	-	-	-	25.0	-	-	-	-	-
	PBT	-	-	-	-	-	25.0	-	-	-	-
	TPEE	-	-	-	-	-	-	25.0	-	-	-
(重 量 部 分)	膨張黒鉛	75.0	70.0	70.0	75.0	75.0	75.0	75.0	-	-	-
	粒状黒鉛	-	-	-	-	-	-	-	60.0	-	-
	鱗片状黒鉛	-	-	-	-	-	-	-	-	60.0	-
	アセレンブラック	-	-	-	-	-	-	-	-	50.0	-
	カーボンブラック	-	-	-	-	-	-	-	-	-	33.3
	ポトマススルホン酸	1.0	0.3	-	-	-	-	-	0.4	0.4	0.5
	0.7										
物性	体積固有抵抗*	3	4	4	70	80	120	47	16	14	55
性	曲げ強さ*	307	325	350	187	153	134	197	253	241	151
											143

注) *: $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ # : kgf/cm^2

【0024】本発明に従いポリイミドを樹脂成分とするサンプルは、高強度、高導電性を示す。一方、ポリアミドを樹脂成分とするサンプル（比較例1、2）、ポリブチレンテレフタレートやポリエステル系熱可塑性エラストマーを樹脂成分とするサンプル（比較例3、4）では、混練性、強度、導電性のいずれに関しても、本発明に従うサンプルよりも劣っている。また、実施例4～7に見られるように、本発明に従いポリイミドを樹脂成分とするサンプルは、導電性フィラーの種類を変えても高い強度と導電性を示す。また、実施例で用いた原料ポリイミド樹脂自体の体積抵抗率は、上記したように3種とも比較例で用いた樹脂よりも高い。それにも拘わらず、同等量の導電性フィラー含有量で比較した場合、得られた成形品の導電性が高くなることは予想外の結果となった。

【0025】[比較例5] 樹脂成分としてポリカーボネート（体積固有抵抗 $4 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重1.20、熱変形温度135℃）を使用した以外は、実施例1～3と同じ操作を試みたが、膨張黒鉛を200重量部（全体の約

67%）程度添加した時点で混練物が粉体状となって混練機から溢れ、混練続行が不可能となった。

【0026】[比較例6] 樹脂成分としてポリスチレン（体積固有抵抗 $1 \times 10^{18} \Omega \cdot \text{cm}$ 、比重1.06、熱変形温度81℃）を使用した以外は、実施例1～3と同じ操作を試みたが、膨張黒鉛を200重量部程度も添加しない内に混練物が粉体状となって混練機から溢れ、混練続行が不可能となった。

【0027】[実施例8～17、比較例7] 粉体成形の手法を用い、サンプル調製を行った。表2に記載の配合原料を秤量し、ジューサーミキサーを用いて混練した。得られた粉体状混合物を加熱プレスにて硬化させ、シートを得た。サンプルによっては、シートをオープン中で二次架橋させた。各サンプルの成形・架橋条件、及び得られた各サンプルの物性をまた、表2に示す。尚、実施例番号において「比」が付されているものは、比較例である。

【0028】

【表2】

表 2 各サンプルの配合・架橋条件と物性

実施例		8	9	比7	10	11	12	13	14	15	16	17
配 合 (重 量 部)	IMI-2	30.0	20.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	IMI-3	-	-	80.0	70.0	30.0	25.0	20.0	10.0	30.0	25.0	25.0
	膨張黒鉛	70.0	80.0	20.0	30.0	70.0	75.0	80.0	90.0	70.0	75.0	75.0
	p-トルエンスルホン酸	0.3	0.2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	ステアリン酸	-	-	-	-	-	-	-	-	0.3	-	-
架 橋 条 件	プレス	温度(℃)	200	200	180	180	180	180	180	180	180	200
		時間(min)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	5
	二次 架橋	温度(℃)	-	-	-	-	-	-	-	250	250	190
		時間(min)	-	-	-	-	-	-	-	30	30	300
物 性	体積固有抵抗*		1.3	0.7	11.7	4.2	0.8	0.8	0.7	0.7	0.8	0.8
	曲げ#	25±1℃	386	375	200	302	537	525	574	422	541	530
		1000℃	324	335	187	220	342	429	376	327	435	434

注) *: $m\Omega \cdot cm$ # ; kgf/cm^2

【0029】本発明に従いポリイミド樹脂と導電性フィラーとを所定量配合したサンプルは、高強度、高導電性を示す。一方、ポリアミド樹脂と導電性フィラーとの配合量が本発明の範囲外のサンプル（比較例7）は強度、導電性とも実施例10～16のサンプルより劣っている。

【0030】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、製造・成形が容易で、強度、導電性に優れる樹脂組成物、並びにそれより成る燃料用電池用セパレーター及びシール材料が提供される。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

H01M 8/02

識別記号

FI

H01M 8/02

(参考)

B

(72) 発明者 西本 一夫

静岡県浜松市新都田1丁目8番1号

Fターム(参考) 4H017 AA04 AA20 AA29 AA31 AA39

AB17 AC03 AD01

4J002 CM041 DA018 DA026 DA036

DL008 EU047 EV237 EV247

EV287 FA048 FD116 GJ02

GQ00

5H026 CX02 EE05 EE06 EE18 HH05